

10 / 524079

PCT/JP03/10068

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

07.08.03

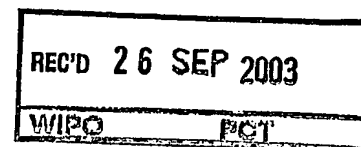
08 FEB 2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 1 月 2 2 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 1 3 9 4 3
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 0 1 3 9 4 3]



出 願 人 本田技研工業株式会社
Applicant(s): 君塚 信夫

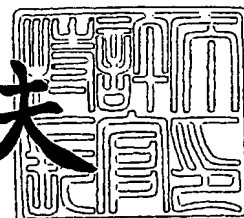
**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

2 0 0 3 年 9 月 1 2 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 H0-0333

【提出日】 平成15年 1月22日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08J 3/075

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 加川 和宏

【発明者】

【住所又は居所】 福岡県福岡市東区香椎浜4丁目1-11-701

【氏名】 君塚 信夫

【発明者】

【住所又は居所】 福岡県福岡市東区箱崎4丁目13-11-502

【氏名】 中嶋 琢也

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 500241479

【氏名又は名称】 君塚 信夫

【代理人】

【識別番号】 100080012

【弁理士】

【氏名又は名称】 高石 橘馬

【電話番号】 03(5228)6355

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2002-231958

【出願日】 平成14年 8月 8日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009324

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9713034

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 自己組織性を有する両親媒性化合物をテンプレートとした分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルム、並びにそれらの製造方法

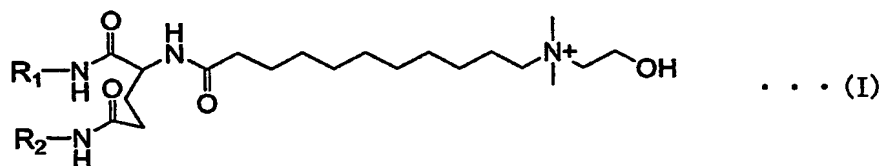
【特許請求の範囲】

【請求項1】 自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとを自己組織化させた後、前記モノマーを重合してなることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項2】 請求項1に記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記両親媒性化合物が炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を有するカチオンであることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項3】 請求項2に記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記カチオンは下記一般式(I)：

【化1】



(ただし、 R_1 及び R_2 は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一でも異なっても良い。)により表されることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項4】 請求項1～3のいずれかに記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記モノマーがアニオン性モノマーであることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項5】 請求項1～4のいずれかに記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記アニオン性モノマーがスルホン酸基を有することを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項6】 請求項5に記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記アニオン性モノマーが2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸であることを

特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項7】 請求項4～6のいずれかに記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記両親媒性化合物の直鎖型又は分岐型アルキル基の炭素数が10以下であることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項8】 請求項1～3のいずれかに記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記モノマーがチオフェン及び／又はチオフェン誘導体であることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

【請求項9】 請求項8に記載の分子配向性ポリマーゲルにおいて、前記チオフェン誘導体が3-チオフェン酢酸、3-チオフェンカルボン酸、3-チオフェンエタノール、3,4-エチレンジオキシチオフェン及びビスチオフェンからなる群から選ばれた少なくとも1種であることを特徴とする分子配向性ポリマーゲル。

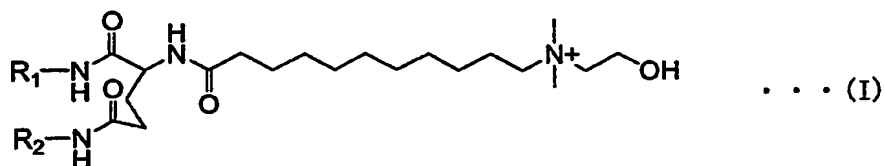
【請求項10】 自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとの溶液をキャストリングした後、前記モノマーを重合してなることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項11】 自己組織性を有する両親媒性化合物の溶液を電極にキャストリングした後、チオフェン及び／又はチオフェン誘導体であるモノマーを含む溶液中で前記電極に通電することにより、前記モノマーを電解重合してなることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項12】 請求項10又は11に記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記両親媒性化合物が炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を有するカチオンであることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項13】 請求項12に記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記カチオンは下記一般式(I)：

【化2】

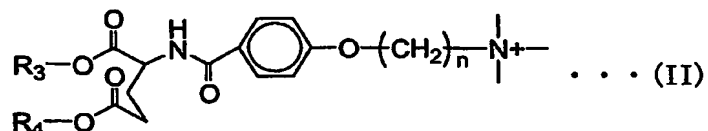


(ただし、R₁及びR₂は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一

でも異なっても良い。)により表されることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項14】 請求項12に記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記カチオンは下記一般式(II)：

【化3】



(ただし、 R_3 及び R_4 は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一でも異なっても良く、 n は2～12の整数を示す。)により表されることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項15】 請求項10、12～14のいずれかに記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記モノマーがスルホン酸基を有するアニオン性モノマー、又はチオフエン及び／又はチオフエン誘導体であることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項16】 請求項15に記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記アニオン性モノマーが2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸であることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項17】 請求項15に記載の分子配向性キャストポリマーフィルムにおいて、前記チオフエン誘導体がチオフエン、3-チオフエン酢酸、3-チオフエンカルボン酸、3-チオフエンエタノール、3,4-エチレンジオキシチオフエン及びビスチオフエンからなる群から選ばれた少なくとも1種であることを特徴とする分子配向性キャストポリマーフィルム。

【請求項18】 請求項1～9のいずれかに記載の分子配向性ポリマーゲルを製造する方法であって、前記両親媒性化合物と前記モノマーとを混合し、前記両親媒性化合物及び前記モノマーを自己組織化させた後、前記モノマーを重合することを特徴とする方法。

【請求項19】 請求項18に記載の分子配向性ポリマーゲルの製造方法において、前記モノマーの重合反応を前記両親媒性化合物と前記モノマーとの自己組織化

による分子組織体の相転移温度未満で行うことを特徴とする方法。

【請求項20】 請求項10～17のいずれかに記載の分子配向性キャストポリマーフィルムを製造する方法であって、前記両親媒性化合物と前記モノマーとの溶液を調製し、前記溶液をキャストニングした後、前記モノマーを重合することを特徴とする方法。

【請求項21】 請求項10～17のいずれかに記載の分子配向性キャストポリマーフィルムを製造する方法であって、前記両親媒性化合物の溶液を調製し、前記溶液を電極にキャストニングした後、前記モノマーの溶液中で前記電極に通電することにより、前記モノマーを電解重合することを特徴とする方法。

【請求項22】 請求項20又は21のいずれかに記載の分子配向性キャストポリマーフィルムの製造方法において、前記モノマーの重合反応を前記両親媒性化合物と前記モノマーとの自己組織化による分子組織体の相転移温度未満で行うことを特徴とする方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、自己組織性を有する両親媒性化合物をテンプレートとして用いた分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルム、並びにそれらの製造方法に関し、特に優れた機械的強度及び分子配向性を有するとともに、電気伝導性の高い分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルム、並びにそれらの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

ポリマーゲルに代表されるソフトマテリアルは、その電気特性、形状特性（相転移等）、及び柔軟性等から新規な材料として開発が進められ、中でも、電気化学的に駆動制御可能なゲルアクチュエータ用材料への応用が近年注目を集めている。このような観点から、ポリマーゲルに優れた導電性を付与することが望まれているが、従来のポリマーを用いる方法では技術的に限界がある。そこでポリマーゲルの有する組織構造、すなわち分子配向性を分子ナノレベルで制御するこ

とが要求される。

【0003】

ポリマーに分子配向性を付与する方法として、特開平7-105718号（特許文献1）はテンプレートとして機能する高分子電解質と、モノマーとを結合してテンプレート錯体を形成した後、オキシダントによりモノマーを酸化重合させて高分子電解質と伝導性ポリマーとからなる分子錯体を形成する方法を開示している。しかしながらこの方法では、ポリマーの分子配向はテンプレートとして機能する高分子電解質の構造によって決まるため、ポリマーの分子配向を分子－ナノレベルでコントロールできない。

【0004】

一方低分子化合物の自己組織化により分子組織体に配向性を付与する試みがなされている。この方法は低分子化合物の分子構造や、低分子化合物が自己組織化する際の温度及び溶媒等を検討することにより、分子組織体の構造や物性を分子－ナノレベルで精密に制御できる可能性がある。

【0005】

特開2002-85957号（特許文献2）はカチオン性の両親媒性化合物と、両親媒性化合物と相互作用するアニオン性の化合物とを自己組織化させることにより、温度に応答して相転移を行う分子配向性ハイドロゲルを形成する方法を開示している。しかしながら、この方法では、ハイドロゲルにおける各分子は重合していないため、十分な機械的強度を得ることができない。

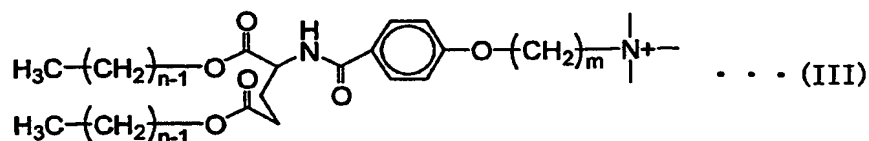
【0006】

また薄型表示素子用材料等への応用の観点から、上述した低分子化合物の自己組織化による分子配向性に優れたキャストポリマーフィルムの開発が進められている。特開平2-238029号（特許文献3）はラジカル重合性モノマーと、二分子膜形成能を有する合成脂質とを混合した分散液を基板上にキャストしたものを乾燥させて積層フィルムを形成し、形成した積層フィルム中のモノマーを重合させた後、合成脂質を抽出することにより、優れた分子配向性及び機械的強度を有するキャストポリマーフィルムを得る方法を開示している。

【0007】

この合成脂質は例えば下記式(III)：

【化 4】



により表される構造を有する。この合成脂質を含むキャストフィルムは多層二分子膜ラメラ構造を有するが、その層間に挿入しているラジカル重合性モノマーは、例えば $\text{CH}_2=\text{CRCOO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{COC}=\text{CRH}_2$ ($n=2\sim 20$) により表され、酸化還元活性を示す π 共役構造を有していないため、優れた電気伝導性を有するキャストポリマーフィルムを得ることができないと考えられる。

【0 0 0 8】

【特許文献 1】

特開平7-105718号公報

【特許文献 2】

特開2002-85957号公報

【特許文献 3】

特開平 2 -238029号公報

【0 0 0 9】

【発明が解決しようとする課題】

従って本発明の目的は、優れた機械的強度及び分子配向性を有するとともに、電気伝導性の高い分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルム、並びにそれらの製造方法を提供することである。

【0 0 1 0】

【課題を解決するための手段】

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、疎水部と親水部とを含む両親媒性化合物は自己組織化することによりファイバー構造に成長してゲル状の分子組織体を形成することに着目し、両親媒性化合物及びそれと相互作用するモノマーから分子組織体を形成した後、前記モノマーを重合すると、優れた分子配向性及び機械的強度を有するとともに高い電気伝導性を有するポリマーゲル及びキャ

ストポリマーフィルムが得られることを発見し、本発明に想到した。

【0011】

すなわち、本発明の分子配向性ポリマーゲルは、自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとを自己組織化させた後、モノマーを重合してなることを特徴とする。

【0012】

本発明の第一の態様における分子配向性キャストポリマーフィルムは、自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとの溶液をキャストした後、前記モノマーを重合してなることを特徴とする。

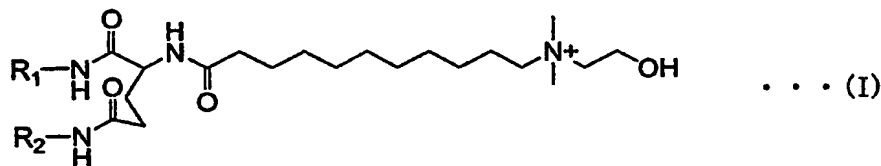
【0013】

また本発明の第二の態様における分子配向性キャストポリマーフィルムは、両親媒性化合物の溶液を電極にキャストした後、チオフェン及び／又はチオフェン誘導体であるモノマーの溶液中で前記電極に通電することにより、前記モノマーを電解重合してなることを特徴とする。

【0014】

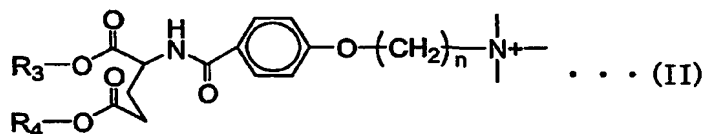
上記分子配向性ポリマーゲル及びキャストポリマーフィルムにおいて、両親媒性化合物は炭素数20以下の直鎖又は分岐型アルキル基を有するカチオンであるのが好ましく、下記一般式 (I)：

【化5】



(ただし、R₁及びR₂は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一でも異なっても良い。) により表されるものであるか、下記一般式(II)：

【化6】



(ただし、 R_3 及び R_4 は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一でも異なっても良く、 n は2～12の整数を示す。)により表されるものであるのがより好ましい。特に前記モノマーがスルホン酸基含有モノマーのようなアニオン性モノマーの場合、前記両親媒性化合物の直鎖型又は分岐型アルキル基の炭素数は10以下であるのが好ましい。

【0015】

上記モノマーは好ましくはアニオン性モノマー、又はチオフェン及び／又はチオフェン誘導体である。アニオン性モノマーとしてはスルホン酸基を有するモノマーが好ましく、特に2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸が好ましい。またチオフェン誘導体としては、3-チオフェン酢酸、3-チオフェンカルボン酸、3-チオフェンエタノール、3,4-エチレンジオキシチオフェン及びビスチオフェンからなる群から選ばれた少なくとも1種であるのが好ましい。

【0016】

本発明の分子配向性ポリマーゲルの製造方法は、自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとを混合し、両親媒性化合物及びモノマーを自己組織化させた後、モノマーを重合することを特徴とする。

【0017】

本発明の第一の態様における分子配向性キャストポリマーフィルムの製造方法は、自己組織性を有する両親媒性化合物と、両親媒性化合物と相互作用するモノマーとの溶液を調製し、前記溶液をキャストした後、モノマーを重合することを特徴とする。

【0018】

本発明の第二の態様における分子配向性キャストポリマーフィルムの製造方法は、両親媒性化合物の溶液を調製し、前記溶液を電極にキャストした後、

前記モノマーの溶液中で前記電極に通電することにより、前記モノマーを電解重合することを特徴とする。

【0019】

いずれの場合も、モノマーの重合反応は、両親媒性化合物とモノマーとの自己組織化による分子組織体の相転移温度未満で行うのが好ましい。

【0020】

【発明の実施の形態】

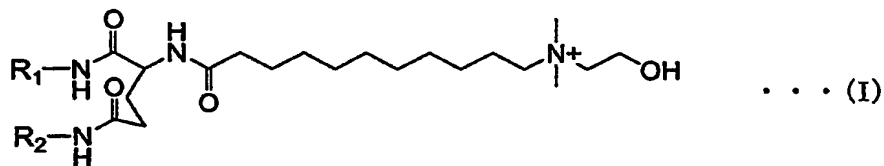
[1] 分子配向性ポリマーゲル

(1) 組成

(A) 両親媒性化合物

本発明に用いる両親媒性化合物は疎水部と親水部とからなる。両親媒性化合物は、疎水部に炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を有するカチオンであるのが好ましく、下記一般式(I)により表されるものがより好ましい。

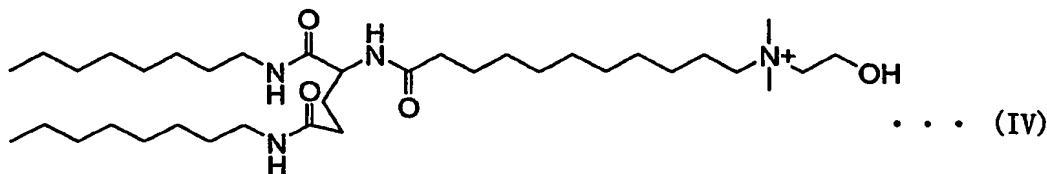
【化7】



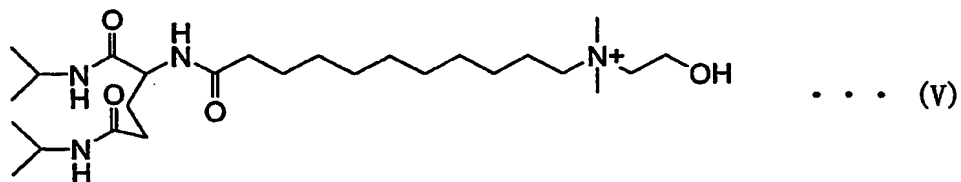
【0021】

カチオン性の両親媒性化合物の好ましい具体例として、下記式(IV)～(VI)に示すものが挙げられるが、本発明に用いるカチオン性の両親媒性化合物はこれらに限定されるものではない。

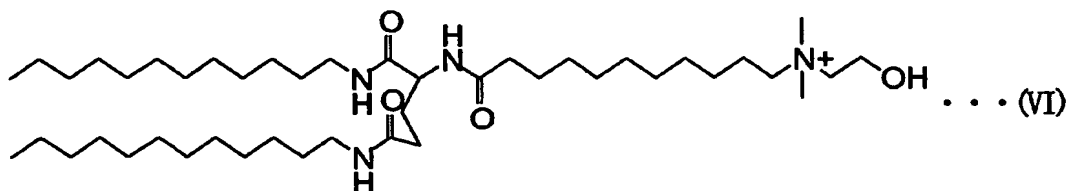
【化8】



【化9】



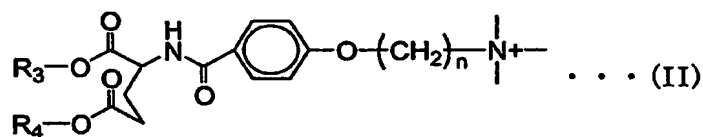
【化10】



【0022】

本発明に用いる両親媒性化合物は下記一般式(II)：

【化11】



(ただし、 R_3 及び R_4 は炭素数20以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を示し、同一でも異なっても良く、 n は2～12の整数を示す。)により表されるものであっても良い。下記一般式(II)において、 n は4～10程度であるのがより好ましい。

【0023】

(B) モノマー

上記両親媒性化合物と相互作用して分子組織体を形成するモノマーは、その重合により得られる分子配向性ポリマーがファイバー構造を有する(沈殿しない)ものでなければならない。そのため、上記モノマーとして、アニオン性モノマー又はチオフエン及び／又はチオフエン誘導体を使用するのが好ましい。

【0024】

(i) アニオン性モノマー

本発明に使用するアニオン性モノマーとしてはスルホン酸基を有するアニオン

性モノマーが好ましく、特に2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸がより好ましい。

【0025】

(ii) チオフェン及びその誘導体

本発明に使用するチオフェン及びその誘導体としては、チオフェン、3-チオフェン酢酸、3-チオフェンカルボン酸、3-チオフェンエタノール、3,4-エチレンジオキシチオフェン及びビスチオフェン等が挙げられる。これらのチオフェン及びその誘導体は単独で用いても数種類併用しても良い。チオフェン及び／又はチオフェン誘導体を用いると、得られる分子配向性ポリマーゲルは優れた電気伝導性を有する。

【0026】

(2) 分子配向性ポリマーゲルの特性

本発明の分子配向性ポリマーゲルは、自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用するモノマーとを自己組織化させた後、モノマーを重合することにより得ることができる。本発明の好ましい両親媒性化合物は、少なくとも2本の疎水性基を有するため、分子間に疎水性相互作用が働き、分子全体で配向性をもって集合しやすくなるとともに、3つのアミド基を有するため、アミド基間の水素結合を介して両親媒性化合物の会合体が互いに相互作用して網目構造を形成しやすい。また本発明の好ましい両親媒性化合物はカチオンであり、好ましいモノマーはアニオンであるため、両者の間に静電的引力が働き、モノマーは両親媒性化合物と相互作用することにより配向性をもって集合する。この状態でモノマーを重合することにより、従来分子配向性を持たない又は分子配向性が著しく低いポリマーにも、分子配向性を付与することが可能となる。

【0027】

本発明の分子配向性ポリマーゲルは、モノマーが重合しているため、高い機械的強度を有する。また分子配向性ポリマーゲルは、両親媒性化合物とモノマーとの自己組織化による分子組織体の相転移温度において、可逆なゲル-ゾル相転移を行う。よって本発明のポリマーゲルは、構成分子の化学構造（分子配向性）やポリマーゲルの形状特性（相転移等）を通じて、その構造や物性を分子-ナノレ

ベルで制御することが可能となる。

【0028】

モノマーとしてチオフェン及び／又はチオフェン誘導体を用いると、チオフェン及び／又はチオフェン誘導体の優れた酸化還元活性のために、得られる分子配向性ポリマーゲルも優れた電気伝導性を有する。

【0029】

モノマーとしてスルホン酸基含有モノマーを用いる場合、両親媒性化合物の直鎖型又は分岐型アルキル基の炭素数が10超であると、両親媒性化合物とスルホン酸基含有モノマーとの自己組織化の際にファイバー構造を有する分子組織体とはならず、凝集及び沈殿するおそれがある。そのため、スルホン酸基含有モノマーは炭素数が10以下の直鎖型又は分岐型アルキル基を有する両親媒性化合物と組合せるのが好ましい。これに対して、モノマーとしてチオフェン及び／又はその誘導体を用いる場合、両親媒性化合物の直鎖型又は分岐型アルキル基の炭素数は20以下であればよく、10以下に限定されない。

【0030】

[2] 分子配向性キャストポリマーフィルム

分子配向性キャストポリマーフィルムは、両親媒性化合物及びそれと相互作用するモノマーの溶液をキャストニングする以外、分子配向性ポリマーゲルと同じである。キャストポリマーフィルムの厚さは特に限定されないが、例えば電導性アクチュエータの用途では100～1000 μm であるのが好ましい。

【0031】

[3] 分子配向性ポリマーゲルの製造方法

自己組織性を有する両親媒性化合物と、それと相互作用するモノマーとを水又は有機溶媒中で混合し、両親媒性化合物及びモノマーを自己組織化させた後、モノマーを重合する。有機溶媒としてはクロロホルム、トルエン、シクロヘキサン、クロロシクロヘキサン等が好ましい。

【0032】

モノマーを重合する方法は特に制限なく、開始剤を使用する重合方法、紫外線等を照射する方法等、通常のポリマー合成に用いる方法を使用することができる。

【0033】

両親媒性化合物とモノマーとの溶液における両親媒性化合物の濃度は、5～50 mMであるのが好ましく、特に10～20 mMであるのが好ましい。またモノマーの濃度は、両親媒性化合物 1 mol に対して、0.5～50 mol であるのが好ましく、例えば 1 mol であるのが好ましい。

【0034】

モノマーの重合反応は、両親媒性化合物とモノマーとの自己組織化による分子組織体の相転移温度未満で行うのが好ましく、通常50～80℃程度でよい。例えば、両親媒性化合物として式 (III) の化合物と、モノマーとして2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸とを用いる場合、重合温度は63.5℃未満であるのが好ましい。重合温度が分子組織体の相転移温度以上となると、分子組織体の凝集及び沈殿が起り、ファイバー構造を有する分子配向性ポリマーゲルを得ることができない。

【0035】

[4] 分子配向性キャストポリマーフィルムの製造方法

(1) 第一の製造方法

自己組織性を有する両親媒性化合物と、それと相互作用するモノマーとを水又は有機溶媒中で混合し、得られた溶液をガラス板等の基板にキャストイングし、溶液を乾燥させた後、モノマーを重合することにより分子配向性キャストポリマーフィルムを形成する。溶液中の分子組織体の自己組織性を維持するために、基板上にキャストした溶液を室温に放置するか僅かに加熱することにより、溶媒を徐々に気化させるのが好ましい。モノマーの重合条件は、分子配向性ポリマーゲルの場合と同じでよい。

【0036】

(2) 第二の製造方法

自己組織性を有する両親媒性化合物の溶液を調製し、電極にキャストイングし、乾燥させてキャストフィルムを形成する。両親媒性化合物溶液の濃度は5～50 mMであるのが好ましく、10～20 mMであるのがより好ましい。キャストフィルム

の膜厚は後述する通電工程において作用極とできればよく、特に限定されないが、一般的には50~1000 nm程度である。チオフェン及び／又はチオフェン誘導体であるモノマーの溶液を調製する。モノマー溶液の濃度は、両親媒性化合物 1 mol に対して100~2000 molであるのが好ましい。溶媒としてはアセトニトリル、水等が好ましい。モノマー溶液には、テトラブチルアンモニウムテトラフルオロボレート、テトラブチルアンモニウムパークロレート等の支持電解質を溶解しておくのが好ましい。

【0037】

キャストフィルムをモノマー溶液中に入れ、キャストフィルムが陽極となるように通電する。陰極としては白金電極、参照電極としてはAg/AgCl等が好ましく使用できる。印加電圧は-900~1600 mVとする。通電することにより溶液中のモノマーがキャストフィルム上及び／又はキャストフィルム中で電解重合し、分子配向性キャストポリマーフィルムが形成する。

【0038】

【実施例】

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれに限定されるものではない。

【0039】

実施例 1

20 mMの式(IV)の化合物を含有する水溶液 2 mLと、20 mMの2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸ナトリウムを含有する水溶液 2 mLとを混合し、分子組織体を形成した。得られた分子組織体を同定するために、 ^1H -NMRを測定した（分解能：600 MHz、化合物：式(IV)の両親媒性化合物及び2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸ナトリウム、溶媒：d-メタノール、測定温度：25℃）。結果を図1に示す。また上記分子組織体の一部を採取し、1 mMに希釈した後、透過型電子顕微鏡で観察した。得られた透過型電子顕微写真を図2に示す。

【0040】

得られた分子組織体に、重合開始剤として5 mMの過硫酸カリウムを添加し、分子組織体の相転移温度（63.5℃）未満の50℃で12時間放置した。得られた重合生

成物を同定するために、 ^1H -NMRを測定した。結果を図3に示す。 ^1H -NMRの測定条件は重合前のものと同じである。また上記重合生成物の一部を採取し、1 mMに希釈した後、透過型電子顕微鏡で観察した。得られた透過型電子顕微鏡写真を図4に示す。

【0041】

図1及び3の ^1H -NMRのチャートより、重合開始剤添加前の分子組織体にみられた2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸のビニルプロトン由来のピーク (5.5~6.5 ppm) が、重合開始剤添加後にはほぼ消失していることが確認できた。また図2及び4の透過型電子顕微鏡写真より、重合開始剤添加前と同様に、重合開始剤添加後も直径10~45 nmのファイバー状会合体が束なって網目構造を有していることが分かった。これらの結果から、重合生成物は高い分子配向性を有するポリマーゲルであることが確認できた。

【0042】

実施例2

20 mMの式(VI)の化合物と、20 mMの3-チオフェン酢酸とをクロロホルムに溶解し、得られた溶液をガラス基板にキャストした後、室温で乾燥して白色のキャストフィルムを作製した。この白色フィルムを、重合開始剤として50 mMの FeCl_3 を含むジエチルエーテル溶液に約1時間浸漬して、3-チオフェン酢酸を重合させ、黒色のフィルムを得た。この黒色フィルムをイオン交換水で洗浄すると、茶褐色のキャストポリマーフィルムになった。茶褐色のキャストポリマーフィルムの一部を採取し、その断面を走査型電子顕微鏡で観察した。走査型電子顕微鏡写真を図5に示す。図5より、キャストポリマーフィルムの断面は層状構造であることが確認された。

【0043】

実施例3

式(VI)の化合物と、3-チオフェン酢酸とをそれぞれアセトニトリルに溶解して濃度20 mMの溶液とし、各溶液を0.25 mLずつ混合し、加熱して分子組織体溶液を調製した。この分子組織体溶液を1.0 cm×3.0 cmのガラス基板上のITO膜（表面抵抗：60 Ω ）上にキャストしたところ、アセトニトリルゲルが形成した

。このアセトニトリルゲルが付着した基板をシャーレ中に静置し、 FeCl_3 のアセトニトリル溶液 (100 mM) 5 mL をシャーレに入れてアセトニトリルゲルを浸した。溶液中には無色のゲルが溶出し、基板上には赤色のポリ3-チオフェン酢酸からなるポリマーゲルが付着した。

【0044】

ポリマーゲルが付着した基板を減圧乾燥した。この試料をSEM基板に固定したものに白金を蒸着し、その断面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、図6及び図7に示すように無定形のポリ3-チオフェン酢酸のゲルが付着している様子が観察された。

【0045】

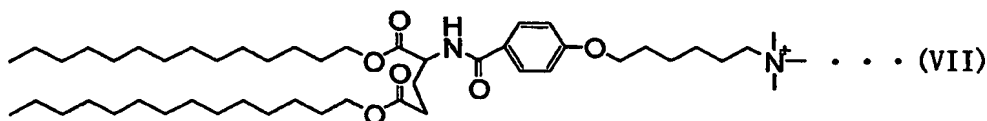
ITO膜上のポリマーゲルを陽極とし、白金電極を陰極とし、 Ag/AgCl を参照電極とし、テトラブチルアンモニウムテトラフルオロボレート (濃度0.1 M) を含むアセトニトリル溶液中で、キャストポリマーゲルの酸化還元特性をサイクリックボルタンメトリー (CV) 測定により調べた (掃引速度: 1800 ~ -1000 mV、掃引速度: 100 mV/s、5 サイクル)。得られたC-V曲線を図8に示す。ポリ3-チオフェン酢酸に由来する可逆的な酸化還元波が観測され (還元波: -340 mV, -740 mV、酸化波: 1300 mV, 1700 mV)、本実施例のポリ3-チオフェンからなる分子配向性キャストポリマーゲルは、良好な酸化還元特性を有することが分かった。

【0046】

実施例4

下記式(VII):

【化12】



に示す化合物の10 mM水溶液 (0.5 mL) を1.0 cm×3.0 cmのガラス基板上のITO膜 (表面抵抗: 60 Ω) 上にキャストイングし、室温で乾燥してキャストフィルムを作製した。

【0047】

ITO膜上のキャストフィルムを陽極とし、白金電極を陰極とし、Ag/AgClを参照電極とし、モノマーとして3,4-エチレンジオキシチオフエン（濃度20 M）、支持電解質としてテトラブチルアンモニウムテトラフルオロボレート（濃度0.1 M）を含むアセトニトリル溶液中で、サイクリックボルタンメトリー（CV）測定を繰り返し行った。キャストフィルムに通電することにより電解重合が進行し、実施例2と同様の黒色の分子配向性キャストポリマーフィルムが形成した（掃引速度：1600～-900 mV、掃引速度：100 mV/s、3サイクル）。得られたC-V曲線を図9に示す。図9から電解重合に伴うポリマーの酸化ピーク（200 mV）及び還元ピーク（-570 mV）の増加が観察され、本実施例の分子配向性キャストポリマーフィルムは良好な酸化還元特性を有することが分かった。

【0048】

比較例1

10 mMの式(III)の化合物を含有する水溶液1.5 mLと、10 mMのポリ（2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸ナトリウム）（Sigma-Aldrich Company製）を含有する水溶液1.5 mLとを25℃で混合すると、直ちに凝集及び沈殿が起こった。

【0049】

【発明の効果】

上記の通り、本発明の分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルムは優れた機械的強度とともに、優れた分子配向性、高い電気伝導度及び良好な酸化還元特性を有する。そのため、本発明の分子配向性ポリマーゲルは、アクチュエータ等への応用が期待できる。また本発明の分子配向性キャストポリマーフィルムは電極上に形成することにより薄型表示素子等への応用が期待できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 実施例1の分子組織体の¹H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図2】 実施例1の分子組織体の透過型電子顕微鏡写真である。

【図3】 実施例1の分子配向性ポリマーゲルの¹H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図4】 実施例1の分子配向性ポリマーゲルの透過型電子顕微鏡写真である。

【図5】 実施例2の分子配向性キャストポリマーフィルム断面の走査型電子顕微鏡写真である。

【図6】 実施例3の分子配向性キャストポリマーフィルムの走査型電子顕微鏡写真である。

【図7】 実施例3の分子配向性キャストポリマーフィルム別の走査型電子顕微鏡写真である。

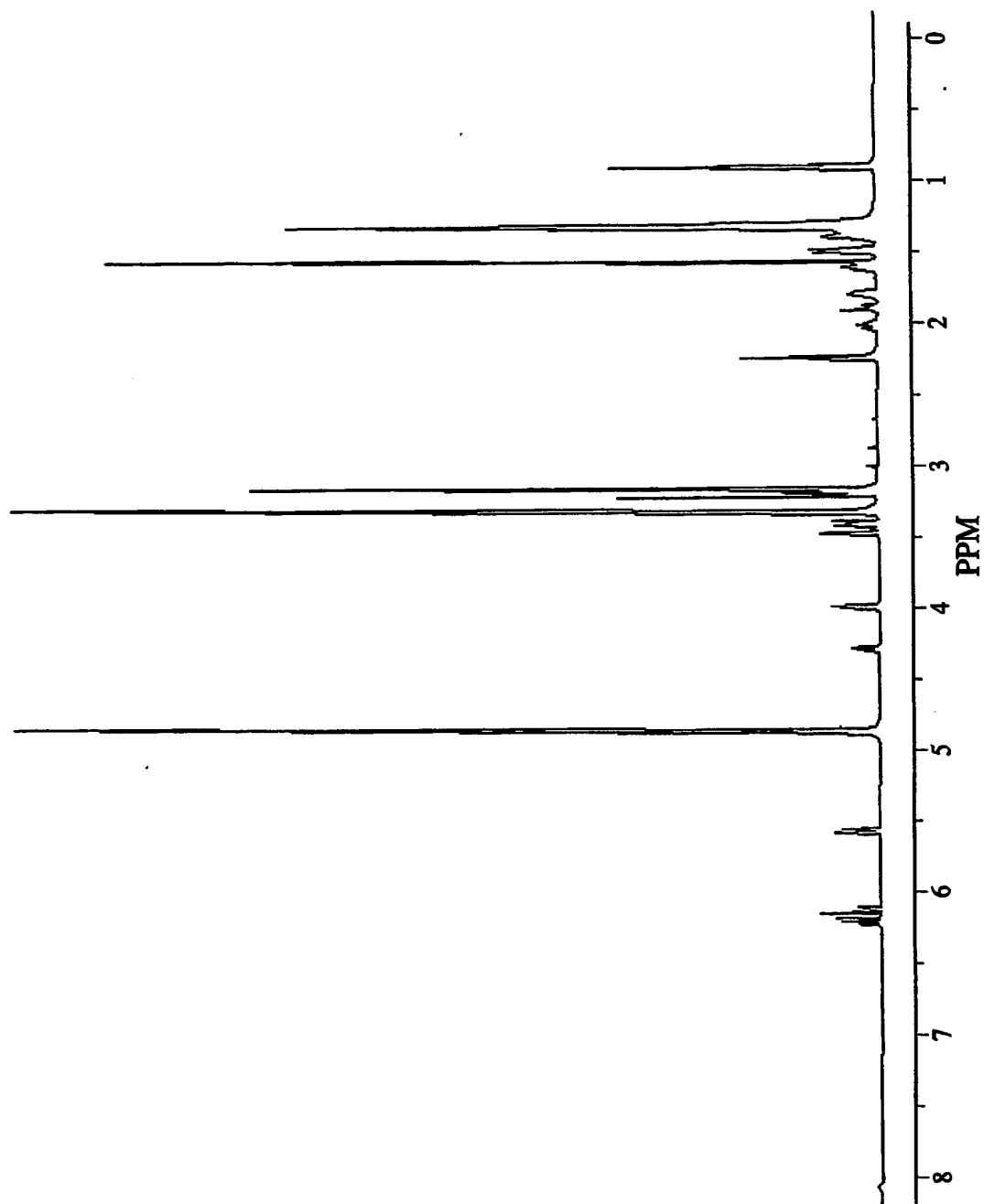
【図8】 ITO基板と、実施例3の分子配向性キャストポリマーゲルとからなる電極を用いたCV曲線である。

【図9】 実施例4の分子配向性キャストポリマーフィルムの走査型電子顕微鏡写真である。

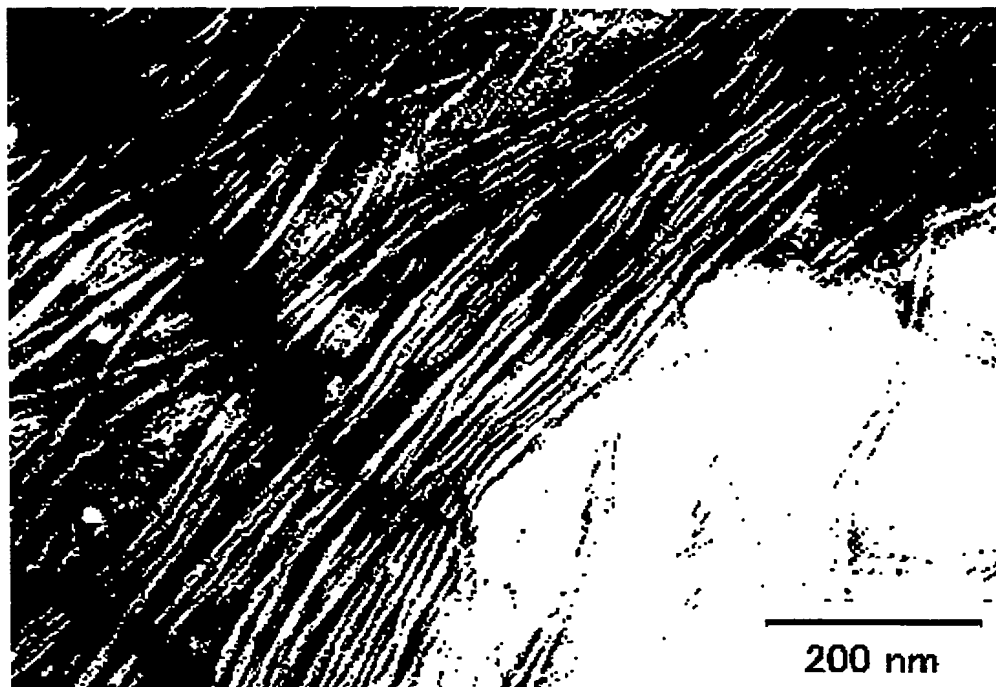
【図10】 ITO基板と、実施例4の分子配向性キャストポリマーフィルムとからなる電極を用いたCV曲線である。

【書類名】 図面

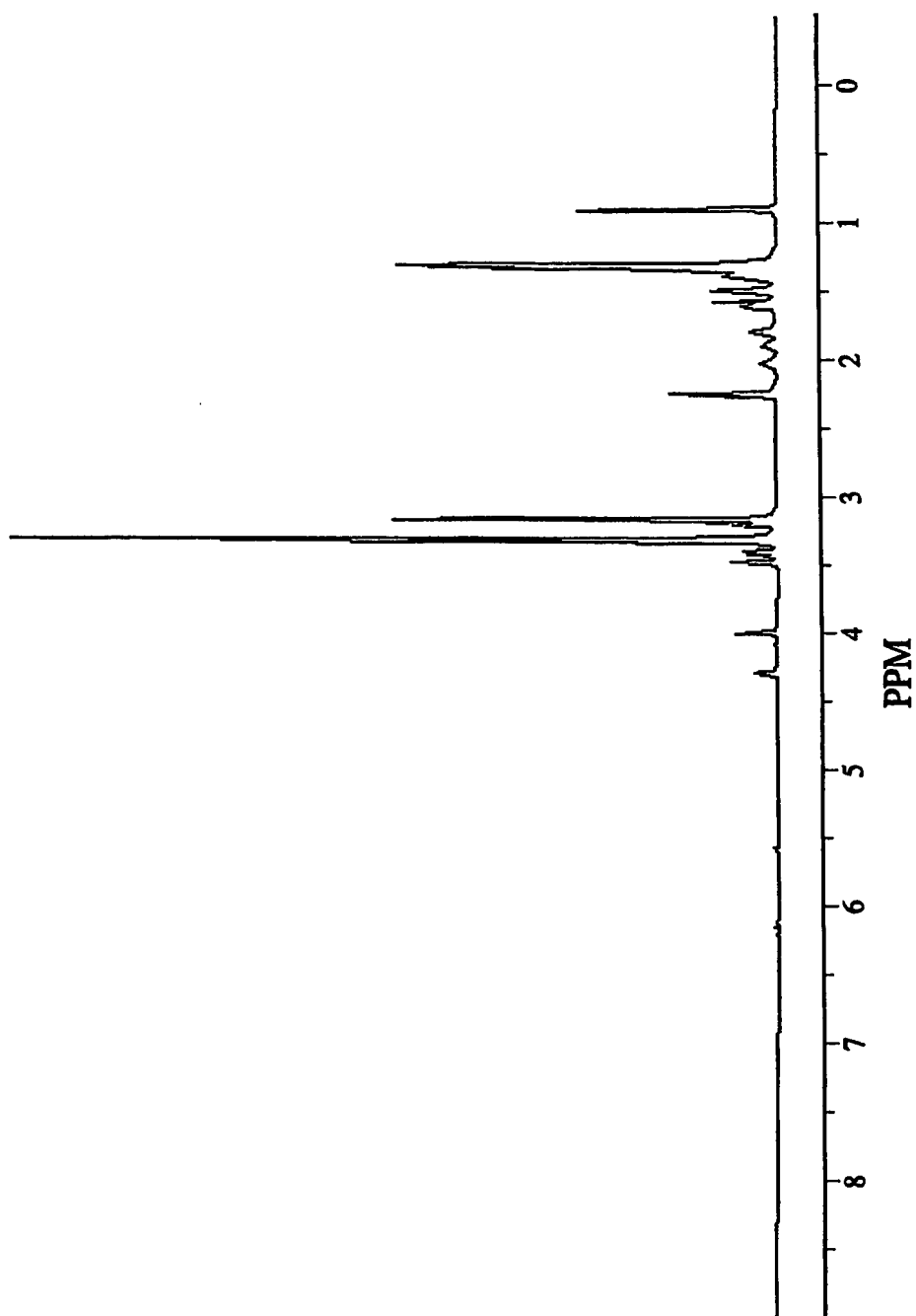
【図1】



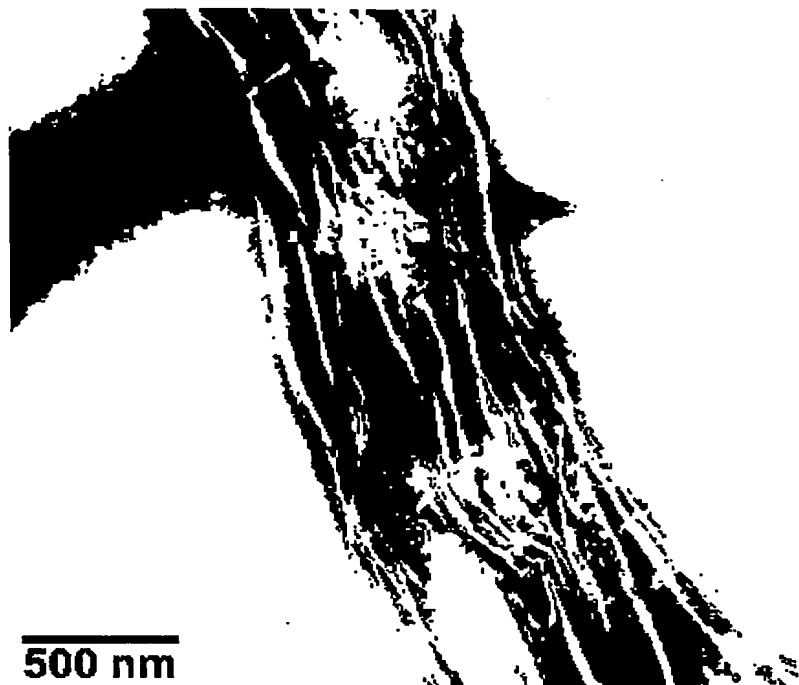
【図 2】



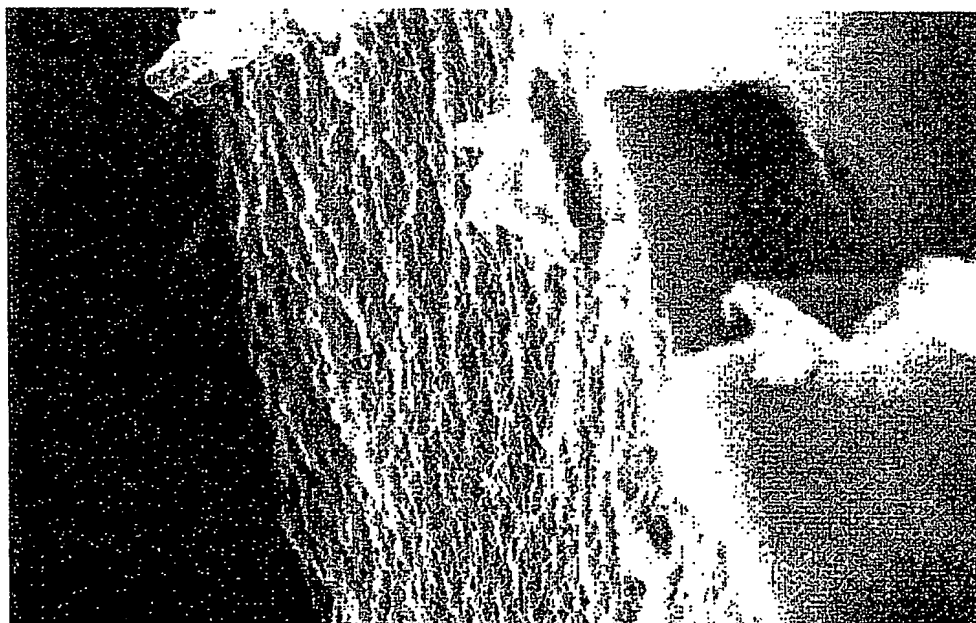
【図3】



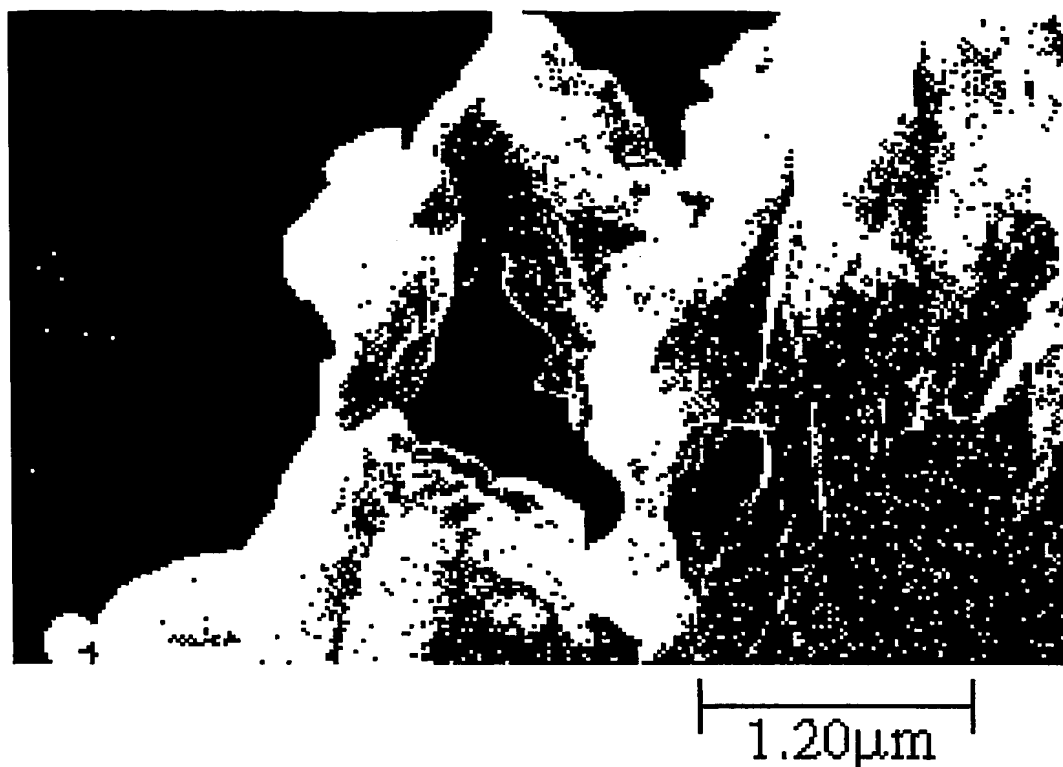
【図 4】



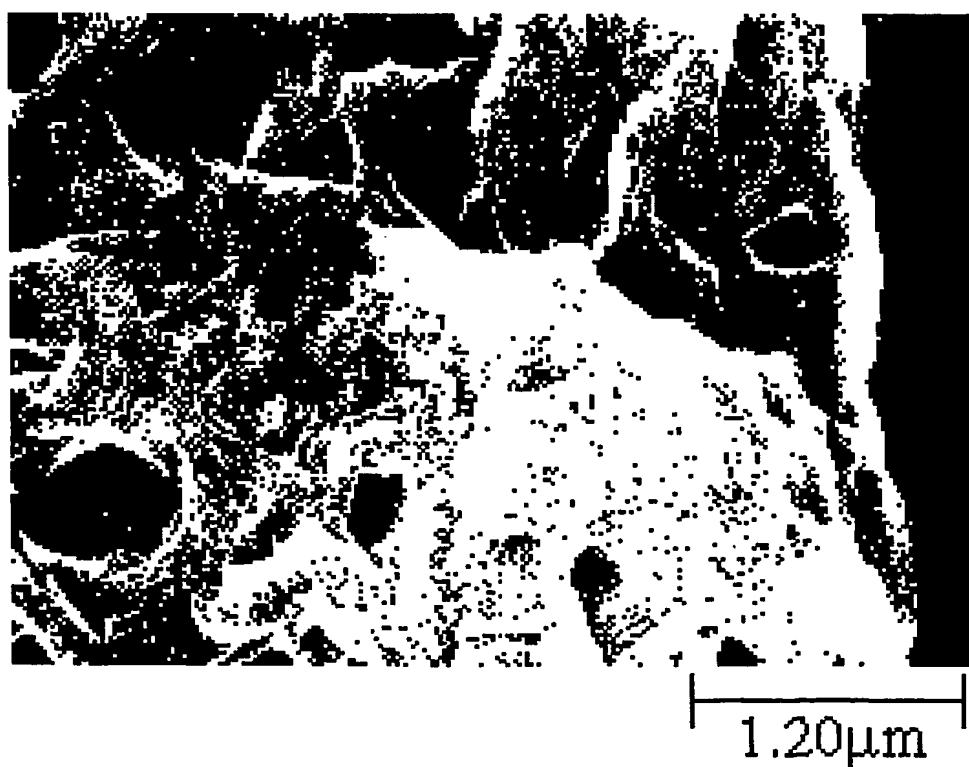
【図 5】



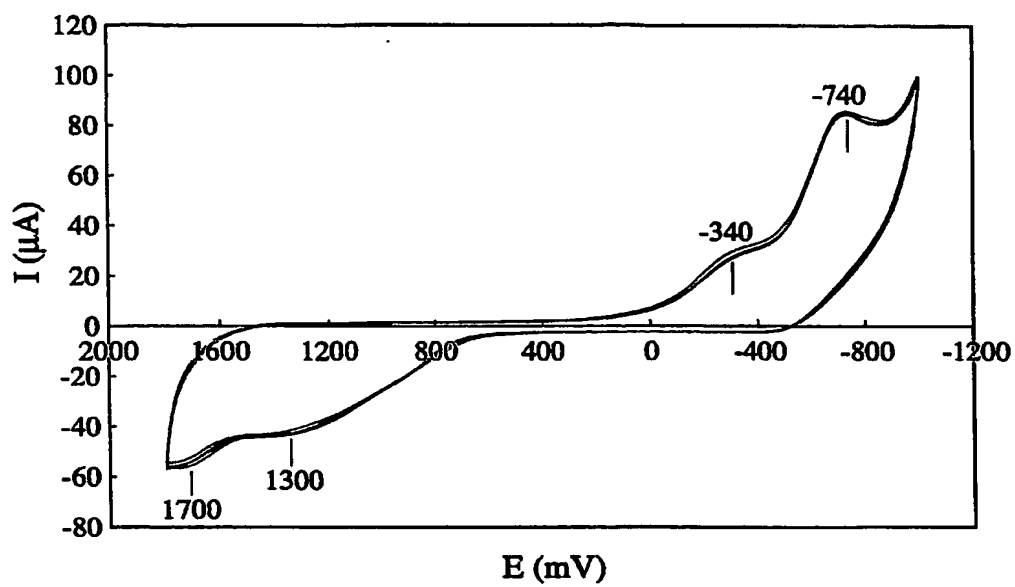
【図 6】



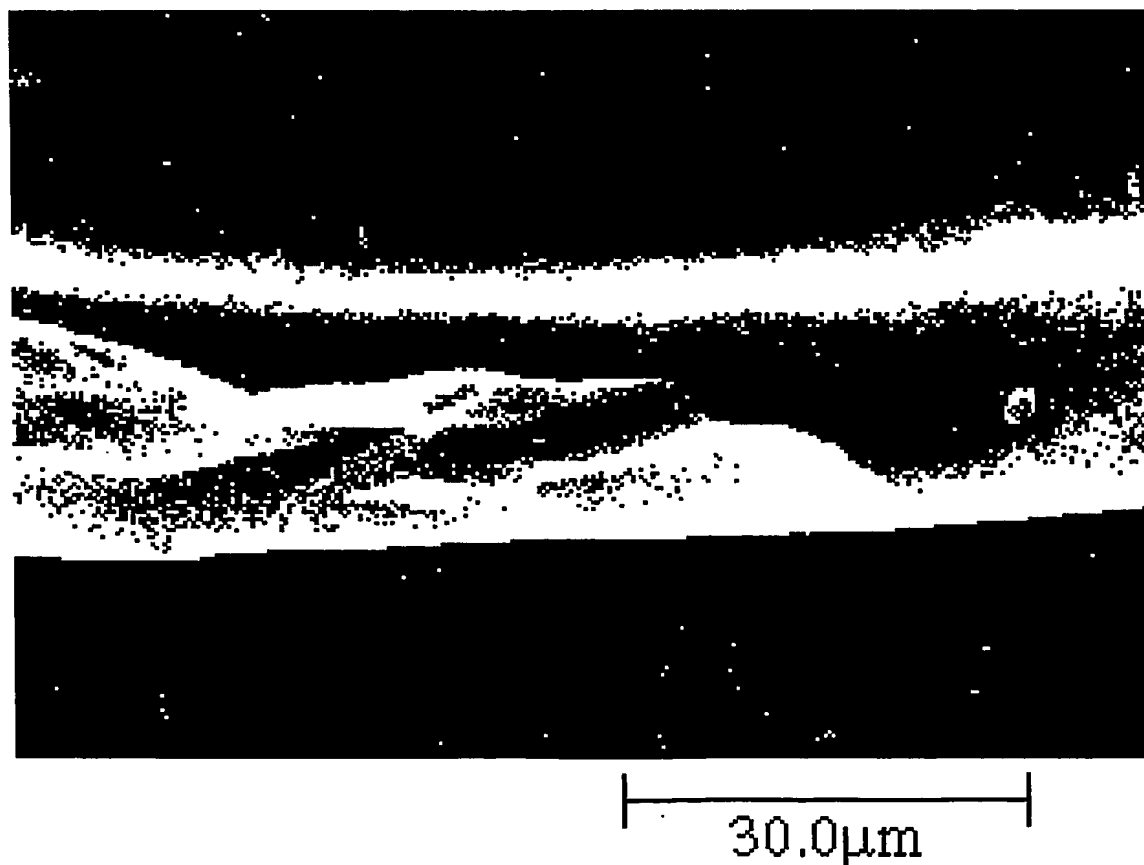
【図 7】



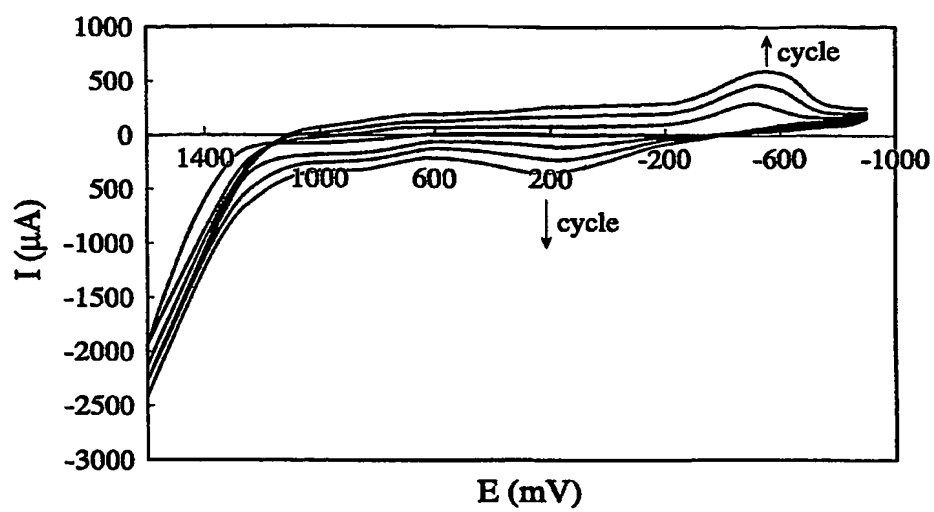
【図 8】



【図 9】



【図 10】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた機械的強度及び分子配向性を有するとともに、電気伝導性の高い分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストポリマーフィルム、並びにそれらの製造方法を提供する。

【解決手段】 自己組織性を有する両親媒性化合物と、前記両親媒性化合物と相互作用を有するモノマーとを自己組織化させた後、前記モノマーを重合してなる分子配向性ポリマーゲル及び分子配向性キャストフィルム、並びにそれらの製造方法。

【選択図】 図 4

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2003-013943
受付番号	50300098913
書類名	特許願
担当官	兼崎 貞雄 6996
作成日	平成15年 4月 3日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000005326
【住所又は居所】	東京都港区南青山二丁目1番1号
【氏名又は名称】	本田技研工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】	500241479
【住所又は居所】	福岡県福岡市東区香椎浜4-1-11-701
【氏名又は名称】	君塚 信夫

【代理人】

申請人	
【識別番号】	100080012
【住所又は居所】	東京都新宿区神楽坂六丁目67番 神楽坂FNB ル5階 高石国際特許事務所
【氏名又は名称】	高石 橘馬

次頁無

特願 2003-013943

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[000005326]

1. 変更年月日

1990年 9月 6日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目1番1号

氏 名

本田技研工業株式会社

特願2003-013943

出願人履歴情報

識別番号

[500241479]

1. 変更年月日

2000年 5月25日

[変更理由]

新規登録

住 所

福岡県福岡市東区香椎浜4-1-11-701

氏 名

君塚 信夫

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.